

پایش خوردگی آلیاژهای آلومینیومی در راکتور تحقیقاتی تهران (TRR)

حسین خلفی، رضا قلیزاده آغویه

پژوهشگاه علوم و فنون هسته‌ای

چکیده:

آلیاژهای آلومینیوم بعنوان غلاف سوخت‌های هسته‌ای و فولاد ضد زنگ بعنوان پوشش دیواره استخر راکتور در راکتور تحقیقاتی تهران استفاده شده‌اند. به منظور بررسی میزان خوردگی فلزات آلومینیوم و فولاد ضد زنگ در راکتور TRR، برنامه پایش خوردگی، طبق دستورالعمل آژانس بین‌المللی انرژی اتمی انجام گرفت. این برنامه شامل تست‌های داخل استخر راکتور، با استفاده از بررسی و مطالعه خوردگی کوپنهای ساخته شده از آلیاژهای آلومینیوم و فولاد ضد زنگ می‌باشد. در این مقاله بررسی خوردگی غلاف سوخت‌های مصرف شده ارائه می‌گردد.

کلمات کلیدی: کوپن خوردگی، رک خوردگی، سوخت‌های مصرف شده، خوردگی حفره‌ای، آزمایش متالوگرافی.

مقدمه:

راکتور تحقیقاتی تهران از نوع استخری و برای حداکثر قدرت ۵MW طراحی شده است. این راکتور اولین بار در آذرماه ۱۳۴۶ بحرانی شده و در ابتدای شروع بکار با سوخت غنی شده بالا (HEU) ۹۳٪ تحت بهره برداری بوده است و نهایتاً در سال ۱۳۶۸ طبق توصیه آژانس در خصوص تبدیل سوخت‌های HEU به LEU در راکتورهای تحقیقاتی، سوخت‌های این راکتور نیز همزمان با بقیه راکتورهای تحقیقاتی با سوخت‌های با غنای ۲۰٪ تعویض شدند. سوخت‌ها از نوع MTR بوده و داخل غلاف آلومینیومی با مشخصات ۹۹٫۶٪ آلومینیوم خالص با دانسیته $۲٫۷ \text{gr/cm}^3$ و ضخامت $۰٫۰۴ \text{cm}$ بصورت ساندویچی قرار گرفته‌اند. برنامه پایش شامل تست‌های داخل استخر، با استفاده از کوپنهای خوردگی ساخته شده از آلیاژهای آلومینیوم و فولاد ضد زنگ می‌باشد [۲]. رک خوردگی در تاریخ ۱۳۸۶، ۲، ۶ در استخر راکتور غوطه‌ور شد. آنالیز سطوح خورده شده از این کوپن‌ها، دانسیته و مقدار حفره‌های ایجاد شده بر روی این سطوح را به ما می‌دهد که بعنوان تابعی از پارامترهای آب استخر می‌باشد.

روش کار: کوپنهای خوردگی شامل آلیاژهای آلومینیوم و فولاد ضد زنگ هستند. این کوپن‌ها، دیسک‌های مدور، با قطر خارجی ۱۰۰mm، قطر داخلی ۷۰mm و ضخامت ۳mm می‌باشند. همه کوپن‌ها دارای سوراخ مرکزی می‌باشند، تا بتوان آنها را در میله فولادی حمایت‌کننده مرکزی قرار داد. کوپنهای خوردگی از جنس ۱۱۰۰-AI (جنس رک سوخت‌ها)، AI-۶۰۶۱ (جنس غلاف سوخت‌ها) و ۳۰۴-AISI (جنس پوشش دیواره استخر) که به

سه شکل کوپل همجنس (Crevice couple) و کوپل غیر همجنس (Galvanic couple) و تکی (Single) تهیه شده‌اند [۲]. ترکیبات شیمیایی آلیاژهای آلومینیوم و فولاد ضد زنگ در جدول (۱) نشان داده شده است. آماده سازی سطح و عمل پرداخت سطوح کوپنها دقیقاً همانند صفحات سوخت با غلاف آلومینیومی انجام پذیرفت. بعبارتی، همه کوپنها ماشین کاری و شماره گذاری شدند. همچنین این کوپنها پولیش شدند تا بحالت نیمه براق برسند. جهت جلوگیری از تماس کوپنهای تکی و کوپل شده از یکدیگر، از دیسکهای مدور پلی اتیلنی با قطر خارجی ۵۸mm، قطر داخلی ۳۰mm و ضخامت ۷mm استفاده شد. برای اینکه قسمت داخلی کوپنهای خوردگی به میله حمایت کننده نچسبد، روکش پلی اتیلنی به ضخامت ۱mm بر روی میله مرکزی فولاد ضد زنگ کشیده شد [۲]. میله حمایت کننده مرکزی از جنس فولاد ضد زنگ ۳۰۴ با ارتفاع ۳۲۰mm و قطر خارجی ۲۲،۵ mm می باشد.

جدول (۱): ترکیبات شیمیایی آلیاژهای آلومینیوم و فولاد ضد زنگ بر حسب درصد وزنی [۱]

Element	Al	Cu	Mg	Mn	Si	Fe	Ti	Zn	Cr	Ni
Al-۱۱۰۰	۱۰۰،۹۹	۰،۱۶	۰،۱	۰،۰۵	۰،۱۶	۰،۴۸	۰،۰۰۵	۰،۰۳	۰،۰۰۵	—
Al-۶۰۶۱	۹۷،۶۹۰	۰،۲۵	۰،۹۴	۰،۱۲	۰،۶۵	۰،۲۴	۰،۰۴	۰،۰۳	۰،۰۴	—
AISI-۳۰۴	—	—	—	۲	۱	۷۰	—	—	۱۹	۸

برای جلوگیری از اتصال رک خوردگی به دیواره استخر، از دو دیسک مدور اکریلیک با قطر ۱۵۰mm و ضخامت ۵mm استفاده شد [۱]. سپس، تمام کوپنها تحت عمل آمایش سطحی قرار گرفتند. یکی از کوپنهای Al-۱۱۰۰ و Al-۶۰۶۱ را که ماشین کاری و پولیش شده‌اند، پس از انجام عملیات آمایش روی آنها، در آب دیونیزه ۹۵°C بمدت ۲۴ ساعت غیرفعال (Passivated) می کنیم. جهت شبیه سازی آسیبهای مکانیکی که معمولاً هنگام جابجایی سوختها اتفاق می افتند، روی یکی از سطوح این کوپنها، خراشی به عمق و پهنا ۰،۵ mm ایجاد گردید [۲]. کوپنهای خوردگی طبق چیدمان جدول (۲) از بالا به پائین در رک خوردگی چیده شدند.

جدول (۲): ترتیب چیدمان کوپنها در رک خوردگی از بالا به پائین

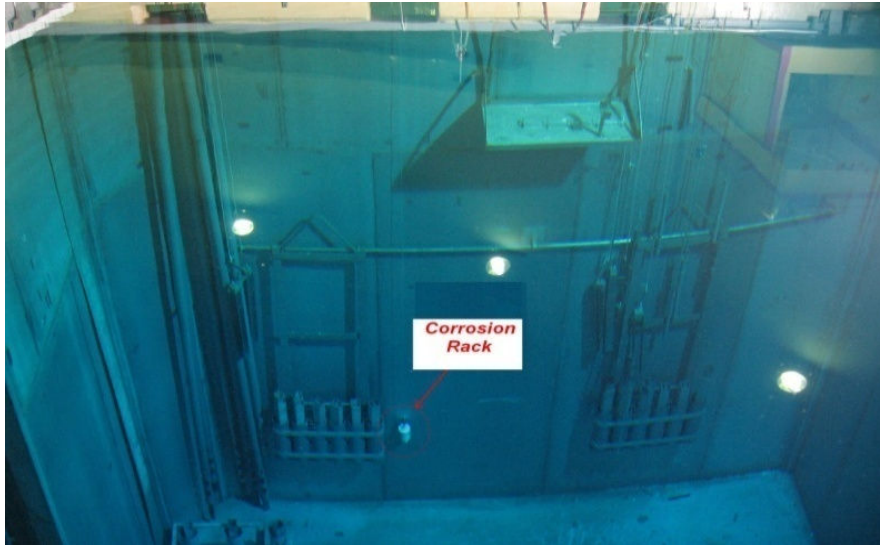
شرایط	آلیاژها	وضعیت
	Al-۶۰۶۱	تکی (Uncoupled)
	Al-۱۱۰۰	تکی (Uncoupled)
	AISI-۳۰۴	تکی (Uncoupled)
Scratched & Pre-oxidized	Al-۶۰۶۱	تکی (Uncoupled)
Scratched & Pre-oxidized	Al-۱۱۰۰	تکی (Uncoupled)
	Al-۶۰۶۱ & Al-۶۰۶۱	کوپل (Coupled)
	Al-۱۱۰۰ & Al-۶۰۶۱	کوپل (Coupled)
	AISI-۳۰۴ & Al-۶۰۶۱	کوپل (Coupled)
	Al-۱۱۰۰ & Al-۱۱۰۰	کوپل (Coupled)
	Al-۶۰۶۱ & Al-۱۱۰۰	کوپل (Coupled)
	AISI-۳۰۴ & Al-۱۱۰۰	کوپل (Coupled)
	AISI-۳۰۴ & AISI-۳۰۴	کوپل (Coupled)

شکل ۱، رک خوردگی بعد از چیدن کوپنها و قبل از قرار دادن آن در استخر راکتور را نشان می دهد.



شکل (۱): رک خوردگی تهیه شده جهت بررسی خوردگی

رک خوردگی در عمق ۸،۵m از سطح استخر و به فاصله ۲۰cm از سوخته‌های هسته‌ای مصرف شده، قرار داده شد [۱]. قبل از چیدن کوپنهای خوردگی در رک خوردگی از هر دو طرف تمام آنها توسط دوربین عکسبرداری شد تا با عکسهای بعد از برداشتن از آب مقایسه شوند. شکل (۲) موقعیت رک خوردگی را در داخل استخر راکتور نشان می دهد.



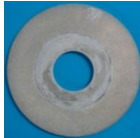
شکل (۲): موقعیت رک خوردگی در محل نگهداری سوخت‌های مصرف شده در داخل استخر راکتور

نتایج: رک خوردگی در ۱۳۸۶،۵،۶ از استخر راکتور بیرون کشیده شد و برای شناسایی انواع خوردگی مورد ارزیابی قرار گرفت. قبل از جدا کردن کوپنهای خوردگی از رک خوردگی، pH آب بر روی سطح خارجی کوپنها برابر ۵ بود، در حالیکه pH آب در سطوح داخلی کوپنهای کوپنها، برابر $pH=4.5$ بود که نشان از شرایط اسیدی بالاتر در داخل کوپنهای کوپل شده بود معنای این تغییر pH این است که در غلاف سوخت‌های هسته‌ای نیز که دارای خلل و فرج فراوان هستند شرایط اسیدی تر بوده و زودتر خورده می‌شوند. تمامی کوپنها، مخصوصاً کوپنهای با کوپل هم جنس دچار تغییر رنگ شده بودند. فقط دو کوپن Al-۶۰۶۱ و Al-۱۱۰۰ که غیرفعال شده بودند، نسبت به قبل از شناور ساختن داخل آب دچار تغییر رنگ نشده بودند. لایه‌های اکسیدی محافظ تشکیل شده بر روی کوپنها نیز، دارای ضخامت تقریبی $1\ \mu m$ می‌باشند که به دو شکل یکنواخت (Even) و غیر یکنواخت (Uneven)، بر روی سطوح داخلی کوپنهای کوپل شده گالوانیکی و شیباری تشکیل شده بودند. شکل ۳، وضعیت رک خوردگی، بعد از ۳ ماه غوطه‌وری در استخر راکتور را نشان می‌دهد.

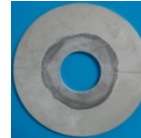


شکل (۳): وضعیت رک خوردگی بعد از ۳ ماه ماندن در داخل استخر راکتور تهران

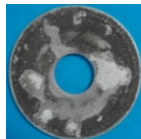
کوپنهای خوردگی از رک خوردگی برداشته شدند و از هر دو وجه آنها توسط دوربین عکسبرداری شد. روی تمام کوپنها ارزیابی خوردگی حفره ای (Pitting) انجام شد. در شکل ۴ تصاویر برخی از این کوپنها ارائه شده است.



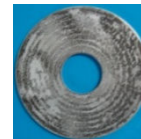
۱) Uncoupled Al-۶۰۶۱, Side A



۲) Uncoupled Al-۱۱۰۰, Side B (Pre-oxidized & Scratched)



۳) Galvanic Coupled Al-۱۱۰۰
Side B, Internal Surface



۴) Crevice Coupled Al-۱۱۰۰
Side B, Internal Surface



۵) Crevice Coupled Al-۱۱۰۰
Side B, Internal Surface



۶) Galvanic Coupled Al-۱۱۰۰
Side A, Internal Surface

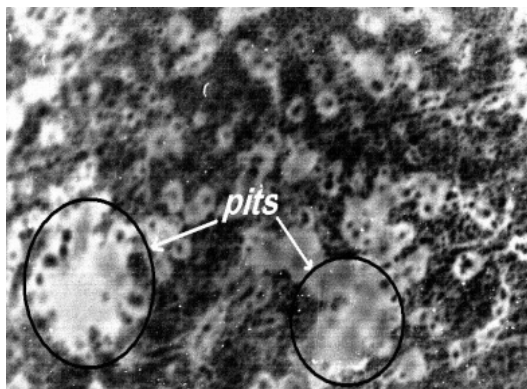


۷) Galvanic Coupled Al-۱۱۰۰
Side A, Internal Surface

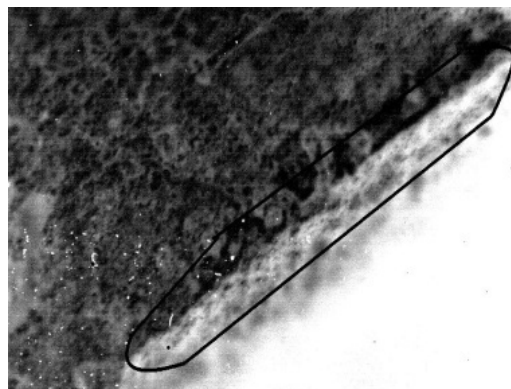


۸) Crevice Coupled S.S-۳۰۴
Side B, External Surface

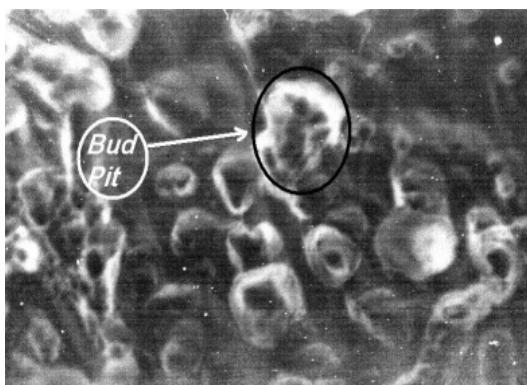
شکل (۴): کوپنهای خوردگی، بعد از ۳ ماه قرار داشتن در مجاورت سوختهای مصرف شده در راکتور تهران بجز کوپنهای غیر فعال شده که دارای شیار بودند، تقریباً تمامی کوپنها، مخصوصاً در نزدیکی مرکز کوپنها دچار خوردگی حفره ای شده بودند. برای تعیین میزان خوردگی کوپنهای خوردگی، از روش متالوگرافی استفاده گردید [۳]. در آزمایش متالوگرافی از یک میکروسکوپ که مجهز به دوربین عکاسی بود، جهت ضبط مشاهدات استفاده گردید، که از نوع (Reflected Optical Microscope, Equipped With Camera) بوده و قابلیت بزرگنمایی های مختلف را داشت. چند نمونه از تصاویر گرفته شده توسط این میکروسکوپ در اشکال ۵ تا ۸ ارائه گردیده است.



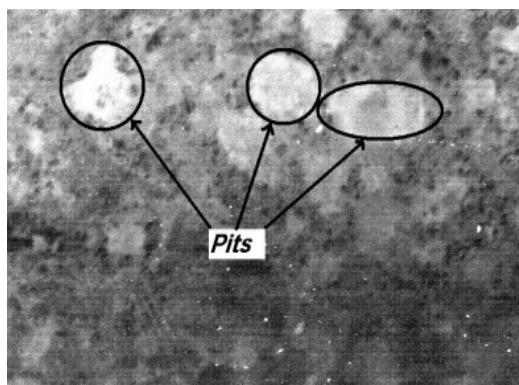
شکل (۶): حفره‌های ایجاد شده بر سطح بیرونی کوپن تکی Al-6061 با بزرگنمایی (M×200)



شکل (۵): نمایی از لبه کوپن تکی Al-6061 با بزرگنمایی (M×200)



شکل (۸): جوانه حفره ایجاد شده بر روی سطح بیرونی کوپن Al-1100 با بزرگنمایی (M×500)



شکل (۷): حفره‌های ایجاد شده در سطح بیرونی کوپن Al-6061 در کوپل شیاری با بزرگنمایی (M×200)

شیمی آب استخر راکتور که به مدت ۳ ماه بر روی رک خوردگی تاثیر داشت، در جدول (۳) ارائه شده است.

جدول (۳): آنالیز آب استخر راکتور تحقیقاتی تهران (TRR) و مقادیر استاندارد عناصر موجود [۴]

عنصر	Cl ⁻	NO ₂ ⁻	NO ₃ ⁻	SO ₄ ²⁻	Na	Li	Sr	Mn	Cs	Zn	pH	Conductivity
موجود در آب استخر راکتور (mg/lit)	۰,۰۹	۰,۰۹۲	۰,۲	۰,۲۳	۰,۰۲	۰,۰۱۵	۰,۰۱	۰,۰۱۸	۰,۰۱۵	۰,۰۱۵	۵,۵	۰,۹μS/cm
حداکثر مقدار استاندارد (mg/lit)	۰,۱	۰,۰۲	۰,۰۳	۱	۰,۰۲	۰,۰۴	۰,۰۵	۰,۰۳	—	۰,۰۴	۶,۵	۱μS/cm



بحث و نتیجه‌گیری: از آنالیز رک خوردگی مورد آزمایش و کوپنها، مشاهدات و نتایج زیر بدست آمدند.

- ۱- خوردگی حفره‌ای (Pitting)، تقریباً در تمام آلیاژهای آلومینیوم اتفاق افتاده بود.
 - ۲- سطوح بالایی کوپنهای تکی و کوپل شده بیشتر خورده شده بودند، چون ذرات ناخالص ریز بیشتری بر روی آنها رسوب کرده بودند.
 - ۳- سطوح کوپنهای فولاد ضدزنگ دچار خوردگی نشده بودند، که نشان از مقاومت بسیار بالای آن دارد.
 - ۴- میزان مقاومت در برابر خوردگی Al-۶۰۶۱ بیشتر از Al-۱۱۰۰ می باشد.
 - ۵- اشعه گامای ساطع شده از پاره‌های شکافت داخل سوخت، تأثیری بر روی خوردگی غلاف سوختها ندارد، چون اشعه گاما با سرعت بسیار زیاد از غلاف سوخت عبور کرده و هیچگونه تأثیری بر روی ساختار مولکولی آن، بجای نمی گذارد [۲].
 - ۶- عمیق ترین حفره ایجاد شده بر روی کوپن Al-۶۰۶۱، دارای عمق $30\ \mu\text{m}$ و پهنای $120\ \mu\text{m}$ بود، که این مقادیر برای عمیق ترین حفره ایجاد شده بر روی کوپن Al-۱۱۰۰، برابر $42\ \mu\text{m}$ و $50\ \mu\text{m}$ تعیین گردید.
- برای ردیابی قبولی سوختهای هسته‌ای که دچار خوردگی شده‌اند، موسسه ایمنی هسته‌ای NAC آزمایش Sipping test را پیشنهاد داده است. بعد از انجام این آزمایش و تعیین میزان نرخ نشتی سوخت مذکور در دو زمان مختلف، اگر اختلاف میزان نشتی در این دو زمان، از ۲ برابر میزان نشتی در لحظه $t=0$ بیشتر بود سوخت بعنوان سوخت معیوب شناخته شده و به واحد بازفرآوری فرستاده می شود [۲]. با توجه به اینکه درصد بسیار بالایی از خوردگی ایجاد شده بر روی غلاف سوختهای هسته‌ای در اثر رسوب و نشست ناخالصیها، اعم از ناخالصیهای داخل آب، گرد و غبار هوا و سایر منابع آلوده کننده آب می باشند، پیشنهاد می گردد از Skimmerهای مکند در استخر خود راکتور و استخر ذخیره سازی سوختهای مصرف شده استفاده گردد. امروزه در اغلب استخرهای هسته‌ای برای فرستادن آب به واحد تصفیه (Demineralizer) از این نوع Skimmer ها استفاده می کنند. این دستگاهها در سطح آب و کناره لبه استخر نصب شده و از بالاترین سطح آب که دارای بیشترین میزان آلودگی است، آب را مکش کرده و به واحد دمینرالایزر می فرستند.

References:

1. Corrosion Monitoring of Aluminium Alloys in the TRIGA IPR-R1 Research Reactor, C.F.C, Neves, M.M.A.M. Schwartzman, Centre for Development of Nuclear Energy (CDTN), National Commission of Nuclear Energy (CNEN), Minas Gerais, Brazil
2. "Corrosion of Research Reactor Aluminium Clad Spent Fuel in Water" Technical Reports Series No:418, IAEA, VIENNA, AUSTRIA.
3. *Corrosion Surveillance Programme for Latin American Research Reactor Al-clad Spent Fuel in Water*, R.Haddad.
4. "Operation of Spent Fuel Storage Facilities" Safety Series No.117, IAEA, VIENNA